Messung der K-Konversionskoeffizienten der isomeren Atomkerne Pd^{107m} und Pd^{109m}

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Georg-August-Universität zu Göttingen

R. UNIV.
BIBLIOTHEEK
LEIDEN

Vorgelegt von
Winfried Weirauch
aus Aachen

Göttingen 1964

D 7

Referent: Professor Dr. A. Flammersfeld

Korreferent: Professor Dr. R. Hilsch

Tag der mündlichen Prüfung: 15. Mai 1964

Zeitschrift für Physik 181, 273—280 (1964)

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Göttingen

Messung der K-Konversionskoeffizienten der isomeren Atomkerne Pd^{107m} und Pd^{109m} ⋆

Von

WINFRIED WEIRAUCH

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 3. Juli 1964)

The K-conversion coefficients α_K of the isomers Pd^{107m} and Pd^{109m} have been measured by detecting the KX-rays and gamma-rays from neutron-irradiated Pd-samples with the aid of a NaJ(Tl)-scintillation spectrometer. The results are $\alpha_K = 0{,}41 \pm 0{,}02$ and $\alpha_K = 0{,}52 \pm 0{,}04$, respectively. These values have been compared with those taken from the tables of Rose, confirming the assumption of E3-transitions which was proposed earlier by other authors. In addition, the assignment of the 21 sec-activity to Pd^{107m} has been confirmed.

1. Einleitung

FLAMMERSFELD [1] fand 1952 zwei isomere Niveaus des Pd mit den Halbwertszeiten $T_{\frac{1}{2}} = 23$ sec und $T_{\frac{1}{2}} = 4{,}8$ min. Er bestimmte die Energie der Konversionselektronen, die beim Übergang der Kerne in den Grundzustand ausgesandt werden, und schätzte die Gesamtkonversionskoeffizienten der beiden isomeren Übergänge ab. Aus den Messungen mit natürlichem Isotopengemisch des Pd konnten die isomeren Niveaus nicht mit Sicherheit zugeordnet werden. SCHINDEWOLF [2] zeigte durch Messungen mit Pd-Präparaten verschiedener Isotopenzusammensetzung, die er mit schnellen und langsamen Neutronen aktivierte, daß es sich bei der 23 sec-Aktivität um Pd^{107m} und bei der 4,8 min-Aktivität um Pd^{109m} handelte.

Die Energie E_γ der γ-Strahlung, die beim Übergang der isomeren Kerne in den Grundzustand emittiert wird, wurde von mehreren Autoren gemessen, z. B. von STRIBEL [3], der für Pd^{107m} den Wert $E_\gamma = (216 \pm 5)$ keV und für Pd^{109m} den Wert $E_\gamma = (188 \pm 5)$ keV angibt. Die K-Konversionskoeffizienten der isomeren Übergänge wurden bisher nur einmal gemessen. Die von STRIBEL [3] erhaltenen Werte sind zusammen mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit in der Tabelle angegeben.

Wie aus den γ-Lebensdauern [1] und aus den K-Konversionskoeffizienten [3] gefolgert wurde, sollte bei beiden Isomeren ein E3-Übergang vor-

⋆ D 7 (gekürzt).

[1] FLAMMERSFELD, A.: Z. Naturforsch. 7a, 296 (1952).

[2] SCHINDEWOLF, U.: Phys. Rev. **109**, 1280 (1958).

[3] STRIBEL, TH.: Z. Naturforsch. **12**a, 939 (1957).

liegen. Um diese Annahme genauer zu prüfen, wurden in der vorliegenden Arbeit die *K*-Konversionskoeffizienten der beiden Übergänge mit möglichst großer Genauigkeit bestimmt.

2. *K*-Konversionskoeffizienten

Die *K*-Konversionskoeffizienten wurden aus den relativen Intensitäten von *K*-Röntgenstrahlung und γ-Strahlung bestimmt. Als Präparate wurden kreisförmige Pd-Folien aus natürlichem Isotopengemisch benutzt. Ihr Durchmesser betrug 30 mm, ihre Dicke variierte zwischen 10 µ und 38 µ. Die auf einem Plexiglasträger befestigten Präparate wurden mit einem Szintillationsspektrometer untersucht. Als Szintillator diente ein NaJ(Tl)-Kristall* mit einem Durchmesser von 38 mm und einer Höhe von 25 mm, der ein 25 µ dickes Aluminiumfenster hatte. Die Präparate befanden sich 10 mm oberhalb des Kristalls, der seinerseits unmittelbar auf der Photokathode eines Photomultipliers** stand. Die Ausgangsimpulse des Photomultipliers wurden über einen Vorverstärker und einen nichtlinearen Verstärker einem 256-Kanal-Diskriminator*** zugeführt.

Aus folgendem Grund war ein nichtlinearer Verstärker erforderlich: Bei den untersuchten isomeren Übergängen war die Energie der γ-Strahlung etwa um den Faktor 10 größer als die Energie der zugehörigen *K*-Röntgenstrahlung. Zwei Strahlungen so verschiedener Energie lassen sich nur ungenau gleichzeitig mit einem 256-Kanal-Diskriminator messen, da die *K*-Röntgenstrahlung dann in wenigen Kanälen am unteren Ende des Spektrums registriert würde und daher nicht mehr sicher vom Rauschen des Photomultipliers zu trennen wäre. Der nichtlineare Verstärker war so gebaut, daß er Spannungsimpulse geringer Höhe mehr verstärkte als Spannungsimpulse großer Höhe. Dadurch wurde der Energieabstand zwischen *K*-Röntgenstrahlung und γ-Strahlung scheinbar kleiner, so daß mit dem 256-Kanal-Diskriminator die Intensitäten beider Strahlungen gleichzeitig genau gemessen werden konnten.

Messungen an Pd^{109m}. Das Isomer Pd^{109m} wurde am Kaskadengenerator oder am Synchro-Zyklotron des Instituts mit verlangsamten Neutronen der Reaktion $Be^9(d, n)B^{10}$ erzeugt. Fig. 1 zeigt einen Auszug aus dem Zerfallsschema des Pd^{109} nach der zusammenfassenden Darstellung von WAY, GOVE, MCGINNIS und NAKASIMA[4]. Als Folge-

* The Harshaw Chemical Company, Cleveland, Ohio.

** Dumont 6363.

*** Technical Measurement Corporation, North Haven, Conn.

[4] WAY, K., N. B. GOVE, C. L. MCGINNIS u. R. NAKASIMA in: *Landolt-Börnstein*, Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik, N. S., Bd. 1. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1961.

produkte des Pd^{109m} treten der β-aktive Kern Pd^{109g} und der isomere Kern Ag^{109m} auf, der seinerseits in den stabilen Grundzustand Ag^{109g} übergeht. Das bei den Messungen nachgewiesene Pd^{109g} entstand jedoch

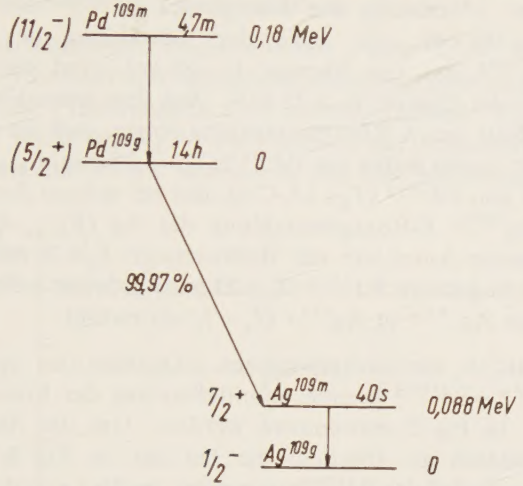

Fig. 1. Auszug aus dem Zerfallsschema des Pd^{109} nach der zusammenfassenden Darstellung von WAY, GOVE, MCGINNIS und NAKASIMA[4]

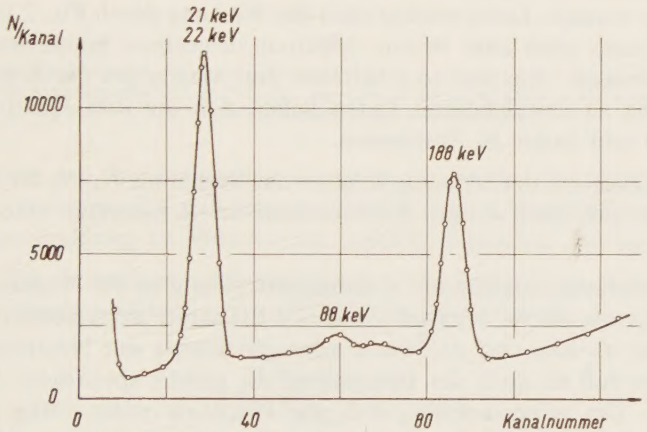

Fig. 2. Spektrum der K- und γ-Quanten nach der Bestrahlung eines Pd-Präparates von 38 µ Dicke mit thermischen Neutronen. Bestrahlungsdauer 5 min, Meßbeginn 4 min nach Bestrahlungsende, Meßdauer 10 min

nur zu einem sehr geringen Teil durch den Zerfall des Pd^{109m}. Der größte Teil dieser Aktivität wurde unmittelbar bei der Bestrahlung des Präparates durch Neutronen erzeugt.

Fig. 2 zeigt das gemessene γ-Spektrum eines 5 min mit langsamen Neutronen bestrahlten Präparates. Die Messung wurde 4 min nach Bestrahlungsende begonnen, die Meßzeit betrug 10 min. Durch die

Wartezeit zwischen Bestrahlung und Messung wurde verhindert, daß die Messung durch Pd^{107m} ($T_{\frac{1}{2}}=21{,}3$ sec), das bei der Bestrahlung ebenfalls entstand, gestört wurde. Im γ-Spektrum traten drei Linien auf: die Linie der γ-Strahlung des Überganges $Pd^{109m} \rightarrow Pd^{109g}$ mit der Energie $E_\gamma = 188$ keV, die Linie der γ-Strahlung des Überganges $Ag^{109m} \rightarrow Ag^{109g}$ mit der Energie $E_\gamma = 88$ keV und die K-Röntgenstrahlung mit der Energie $E_K \approx 22$ keV. Aus dem weiterhin gemessenen zeitlichen Abfall der K-Röntgenstrahlung folgte, daß sie aus drei Anteilen bestand: einem Anteil von Pd^{109m} ($T_{\frac{1}{2}}=4{,}75$ min, $E_{K,Pd}=21{,}2$ keV), einem Anteil von Pd^{109g} ($T_{\frac{1}{2}}=13{,}47$ h), das bei seinem Zerfall über das kurzlebige Ag^{109m} K-Röntgenstrahlung des Ag ($E_{K,Ag}=22{,}2$ keV) erzeugt, und einem Anteil mit der Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}} \approx 20$ min. Die dritte Komponente konnte als Pd^{111g} ($T_{\frac{1}{2}}=22$ min) gedeutet werden, das über das kurzlebige Ag^{111m} in Ag^{111g} ($T_{\frac{1}{2}}=7{,}5$ d) zerfällt.

Die Anzahl N_γ der nachgewiesenen γ-Quanten des isomeren Überganges $Pd^{109m} \rightarrow Pd^{109g}$ konnte unmittelbar aus der Linie der Energie $E_\gamma = 188$ keV in Fig. 2 entnommen werden. Um die Anzahl N_K der K-Röntgenquanten zu erhalten, die bei der in Fig. 2 dargestellten Messung vom Zerfall des Pd^{109m} stammten, mußten von der gemessenen K-Röntgenstrahlung zunächst die Anteile von Pd^{109g} und Pd^{111g} abgezogen werden. Dazu wurden nach der Messung des in Fig. 2 gezeigten γ-Spektrums noch zwei weitere Spektren zu geeignet gewählten Zeiten aufgenommen. Aus den so erhaltenen drei Messungen der K-Röntgenstrahlung zu verschiedenen Zeiten ließen sich die drei Komponenten trennen und damit N_K bestimmen.

Als Ergebnis der Messung folgt so das Verhältnis N_K/N_γ für Pd^{109m}, aus dem sich nach einigen Korrektionen der K-Konversionskoeffizient ergibt.

Die Selbstabsorption der K-Röntgenstrahlung im Pd-Präparat wurde auf folgende Weise ermittelt: Vier Pd-Präparate verschiedener Dicke zwischen $d=10$ µ und $d=38$ µ wurden gleichzeitig mit Neutronen aktiviert, so daß sie nach der Bestrahlung die gleiche spezifische Aktivität hatten. Um sicherzustellen, daß alle Präparate unter völlig gleichen Bedingungen bestrahlt wurden, wurden sie während der Bestrahlung auf einer umlaufenden Scheibe von 5 cm Durchmesser befestigt. Nach der Bestrahlung wurde gewartet, bis nur noch Pd^{109g} und als Folgeprodukt Ag^{109m} vorhanden waren. Dann wurde nacheinander bei allen Präparaten die Intensität der K-Röntgenstrahlung gemessen. Nach Umrechnung aller Messungen auf den gleichen Zeitpunkt ergab sich so die Abhängigkeit der Intensität der K-Röntgenstrahlung von der Präparatdicke bei konstanter spezifischer Aktivität des Präparates. Diese Abhängigkeit beschreibt die Selbstabsorption. Streng gelten diese Absorptionsmessun-

gen für die K-Röntgenstrahlung des Ag, da sie mit Hilfe des Zerfalles des Ag^{109m} durchgeführt wurden. Aber wegen der geringen Energiedifferenz zwischen den K-Röntgenstrahlungen des Ag und des Pd konnten die Ergebnisse für Pd übernommen werden.

Bei drei verschiedenen Präparatdicken wurde N_K/N_γ gemessen und mit den ermittelten Korrektionen für die Selbstabsorption der K-Röntgenstrahlung auf die Präparatdicke $d=0$ zurückgerechnet. Fig. 3 zeigt die so erhaltenen Werte für N_K/N_γ als Funktion der Präparatdicke d. Die drei Meßpunkte, die jeweils Mittelwerte aus fünf Messungen darstellen,

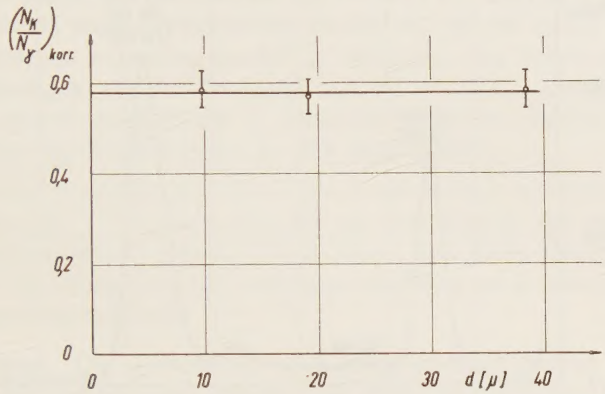

Fig. 3. Bei verschiedenen Präparatdicken d gemessenes Verhältnis N_K/N_γ für Pd^{109m}, korrigiert auf Selbstabsorption der K-Röntgenstrahlung im Präparat. N_K = Anzahl der nachgewiesenen K-Röntgenquanten des Pd^{109m}; N_γ = Anzahl der nachgewiesenen γ-Quanten des Pd^{109m}

lassen sich mit befriedigender Genauigkeit durch eine horizontale Gerade verbinden, so daß die Korrektion auf Selbstabsorption der K-Röntgenstrahlung im Präparat als bestätigt angesehen werden kann.

Aus dem Mittelwert aller korrigierten Werte für N_K/N_γ wurde der K-Konversionskoeffizient α_K berechnet nach der Gleichung:

$$\alpha_K = \left(\frac{N_K}{N_\gamma}\right)_{\text{korr}} \cdot \frac{\eta_\gamma}{\omega_K}.$$

Dabei bezeichnen η_γ die Photoansprechwahrscheinlichkeit des NaJ(Tl)-Kristalls für die γ-Strahlung (die Ansprechwahrscheinlichkeit für die K-Röntgenstrahlung konnte als 1 angenommen werden) und ω_K die K-Fluoreszenzausbeute des Pd. η_γ wurde mit Hilfe einer Darstellung bei MOTT und SUTTON[5] und nach Angaben von HEATH, BELL

[5] Mathematics Panel, ORNL, veröffentlicht von W. E. MOTT und R. B. SUTTON in: S. FLÜGGE, Handbuch der Physik, Bd. 45, S. 110. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1958.

und DAVIS[6] bestimmt. Die K-Fluoreszenzausbeute wurde einer Arbeit von HAGEDOORN und WAPSTRA[7] entnommen.

Messungen an Pd^{107m}. Zur Erzeugung des Isomers Pd^{107m} ($T_{\frac{1}{2}}$ = 21,3 sec) wurden die Pd-Folien am Synchro-Zyklotron mit schnellen Neutronen bestrahlt. Dabei entstand Pd^{107m} durch einen $(n, 2n)$-Prozeß. Außerdem entstanden noch folgende radioaktive Kerne: Pd^{109m} ($T_{\frac{1}{2}}$ = 4,75 min), Rh^{104m} ($T_{\frac{1}{2}}$ = 4,4 min), Pd^{111g} ($T_{\frac{1}{2}}$ = 22 min), Rh^{107} ($T_{\frac{1}{2}}$ = 21 min) und Pd^{109g} ($T_{\frac{1}{2}}$ = 13,47 h).

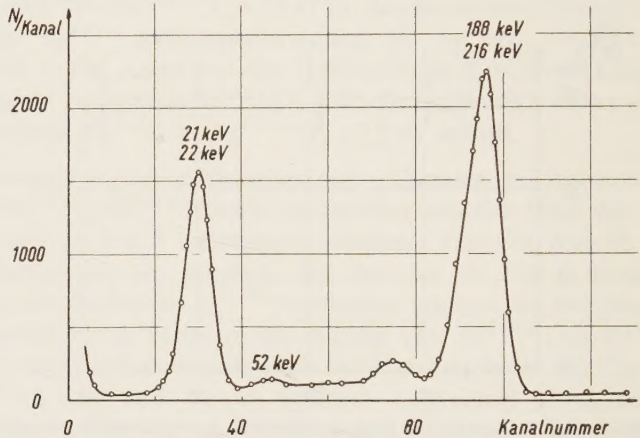

Fig. 4. Spektrum der K- und γ-Quanten nach der Bestrahlung eines Pd-Präparates von 10 µ Dicke mit schnellen Neutronen. Bestrahlungsdauer 30 sec, Meßbeginn 40 sec nach Bestrahlungsende, Meßdauer 45 sec

Fig. 4 zeigt das gemessene γ-Spektrum eines 30 sec mit schnellen Neutronen bestrahlten Präparates. Die Messung wurde 40 sec nach Bestrahlungsende begonnen, die Meßzeit betrug 45 sec. Außer der K-Röntgenstrahlung trat eine starke Linie der Energie $E_\gamma \approx 200$ keV auf, die durch Überlagerung der γ-Strahlungen von Pd^{107m} ($E_\gamma = 216$ keV) und Pd^{109m} ($E_\gamma = 188$ keV) entstand. Unmittelbar an diese Linie schloß sich zu kleineren Energien hin eine schwache Linie an, die durch Streuung der γ-Strahlung in der Kristall- und Präparathalterung erklärt werden konnte. Die schwach angedeutete Linie der Energie $E_\gamma = 52$ keV wurde durch den Zerfall des Rh^{104m} hervorgerufen.

Die Trennung der einzelnen Anteile der K-Röntgenstrahlung wurde wie bei den Messungen an Pd^{109m} aus dem zeitlichen Abfall der K-

[6] HEATH, R.L., P.R. Bell, and R.C. Davis: ORNL-1415 (1952), veröffentlicht in: C.E. CROUTHAMEL, Applied Gamma-Ray Spectrometry, S. 336. Oxford-London-New York-Paris 1960.

[7] HAGEDOORN, H.L., and A.H. WAPSTRA: Nuclear Phys. **15**, 146 (1960).

Röntgenstrahlung abgeleitet. Dabei brauchte aber nur nach vier Halbwertszeiten analysiert zu werden, da ohne wesentlichen Fehler die Halbwertszeiten von Pd^{109m} und Rh^{104m} und ebenfalls die Halbwertszeiten von Pd^{111g} und Rh^{107} als gleich angesehen werden konnten. Um die vier Anteile der K-Röntgenstrahlung zu trennen, wurden nach der Aktivierung des Präparates vier γ-Spektren zu geeignet gewählten Zeiten aufgenommen. Aus den Flächen der K-Röntgenlinien in den vier Spektren wurde berechnet, welche Anzahl N_K der im ersten Spektrum nachgewiesenen K-Röntgenquanten vom Zerfall des Pd^{107m} stammte. Entsprechend wurde aus den Flächen der γ-Linien der Energie $E_\gamma \approx 200$ keV in den beiden ersten Spektren die Anzahl N_γ der im ersten Spektrum nachgewiesenen γ-Quanten des Pd^{107m} berechnet. Aus dem so erhaltenen Verhältnis N_K/N_γ für Pd^{107m} wurde wie bei den Messungen an Pd^{109m} der K-Konversionskoeffizient α_K ermittelt. Es wurden jedoch nur Messungen mit der Präparatdicke $d = 10\,\mu$ durchgeführt.

Zwischen Präparat und NaJ(Tl)-Kristall befand sich bei den Messungen an Pd^{107m} ein Absorber für die β-Strahlung; bei den meisten Messungen wurde zu diesem Zweck eine 1 mm dicke Plexiglasscheibe benutzt. Die Absorption der K-Röntgenstrahlung im β-Absorber wurde durch Messung bestimmt.

Ergebnis. Die gemessenen K-Konversionskoeffizienten sind zusammen mit den nach den Tabellen von ROSE[8] interpolierten Werten für verschiedene Strahlungsarten in der Tabelle angegeben, die außerdem die von STRIBEL[3] gemessenen Werte enthält.

Tabelle. *Zusammenstellung der gemessenen K-Konversionskoeffizienten α_K und ihr Vergleich mit den theoretischen Werten von* ROSE[8] *für verschiedene Strahlungsarten*

Kern	α_K (STRIBEL[3])	α_K (vorliegende Arbeit)	α_K (ROSE[8])		
			M2	E3	M3
Pd^{107m}	$0{,}30 \pm 0{,}05$	$0{,}41 \pm 0{,}02$	0,22	0,34	1,1
Pd^{109m}	$0{,}6 \pm 0{,}1$	$0{,}52 \pm 0{,}04$	0,36	0,58	1,9

Bei Pd^{107m} ist der gemessene Wert etwas größer als der für einen E3-Übergang berechnete, ein M3-Übergang läßt sich jedoch sicher ausschließen. Eine Mischung beider Multipolarten ist aus Paritätsgründen nicht möglich. Bei Pd^{109m} ist der gemessene Wert etwas kleiner als der für einen E3-Übergang berechnete, aber ein reiner M2-Übergang kann ausgeschlossen werden. Eine Mischung aus M2- und E3-Strahlung ist ebenfalls unwahrscheinlich, da nach der Weißkopf-Formel dann die M2-Strahlung stark überwiegen sollte; das ist aber mit dem Meßergebnis nicht verträglich. Bei beiden isomeren Kernen muß also in Übereinstimmung mit der bisherigen Annahme ein E3-Übergang vorliegen.

[8] ROSE, M.E.: Internal Conversion Coefficients. Amsterdam: North-Holland Publishing Company 1958.

3. Prüfung der Massenzahl des Pd^{107m}

Um die von SCHINDEWOLF[2] bestimmte Massenzahl $A=107$ des 21 sec-Isomers nochmals zu prüfen, wurden ein an Pd^{106} angereichertes Präparat* (Anreicherungsgrad: 82,33%) und ein Präparat aus natürlichem Isotopengemisch am Kaskadengenerator mit verlangsamten und am Synchro-Zyklotron mit schnellen Neutronen aktiviert. Es wurde untersucht, mit welcher Häufigkeit das 21 sec-Isomer unter den verschiedenen Bedingungen auftrat. Dabei ergab sich, daß dieses Isomer durch langsame Neutronen aus Pd^{106} und durch schnelle Neutronen aus einem anderen Ausgangskern erzeugt wurde. Als erzeugender Prozeß, der nur bei hoher Neutronenenergie auftritt, kommt lediglich ein $(n, 2n)$-Prozeß in Frage. Da der radioaktive Kern Pd^{107} als Ausgangskern für diesen Prozeß ausscheidet, kann nur der Prozeß $Pd^{108}(n, 2n)$ zu einem Isomer führen, das auch aus Pd^{106} durch einen (n, γ)-Prozeß erzeugt werden kann. Damit liegt aber in Übereinstimmung mit den Ergebnissen von SCHINDEWOLF die Massenzahl $A=107$ des 21 sec-Isomers fest.

Herrn Prof. Dr. A. FLAMMERSFELD danke ich herzlich für die Anregung zu dieser Arbeit und für sein förderndes Interesse am Fortgang der Untersuchungen. Dem Niedersächsischen Kultusministerium gebührt Dank für zusätzliche Mittel.

* Union Carbide Nuclear Company, Oak Ridge, Tennessee.

Lebenslauf

Am 16. September 1931 wurde ich, Winfried Josef Weirauch, als Sohn des Oberingenieurs Josef Weirauch und seiner Ehefrau Anna, geborene Baur, in Aachen geboren. Von 1939 bis 1943 besuchte ich in Aachen die Volksschule. Infolge Kriegseinwirkung verließ die Familie 1943 Aachen und verbrachte die nächsten zwei Jahre in der Nähe von Bedburg an der Erft. Von dort aus besuchte ich kurzzeitig das altsprachliche Gymnasium in Düren und die Oberschule in Bedburg. Nach Kriegsende kehrten wir nach Aachen zurück. Hier besuchte ich von 1946 bis zu meiner Reifeprüfung im Jahre 1953 das altsprachliche Kaiser-Karls-Gymnasium.

Im Sommersemester 1953 begann ich an der Technischen Hochschule Aachen das Studium der Physik. Hier legte ich im Oktober 1955 die Diplom-Vorprüfung in Physik ab.

Vom Wintersemester 1955/56 an setzte ich mein Studium an der Universität Göttingen fort. Im Herbst 1957 begann ich im Zweiten Physikalischen Institut dieser Universität unter der Leitung von Herrn Professor Dr. A. Flammersfeld mit einer Diplomarbeit mit dem Titel „Untersuchungen über die Beschleunigung von Ionen in einem unvollkommenen Vakuum" und bestand im Februar 1960 die Diplomprüfung in Physik.

Seit dem 1. Oktober 1960 bin ich mit der Verwaltung einer wissenschaftlichen Assistentenstelle am Zweiten Physikalischen Institut der Universität Göttingen beauftragt.